

Patent Abstracts of Japan

* PUBLICATION NUMBER : 11171801
PUBLICATION DATE : 29-06-99

APPLICATION DATE : 11-12-97
APPLICATION NUMBER : 09341532

APPLICANT : IDEMITSU KOSAN CO LTD;

INVENTOR : HOSOKAWA CHISHIO;

INT.CL. : C07B 63/00 B01D 7/00 C07C209/84 C07C211/54 C07F 5/06

TITLE : SUBLIMATION PURIFICATION

ABSTRACT : PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a method for efficiently subliming and purifying an organic compound useful as a constituent material or the like of an organic electroluminescence element by stirring or vibrating the organic compound while carrying out the sublimation purification so that the shell formed on the surface of the compound during the sublimation may be destroyed or pulverized.

SOLUTION: An organic compound is subjected to a sublimation purification while stirring or vibrating the organic compound in the method for subliming and purifying an organic compound. A chelate complex compound such as tris(8-quinolinolato)aluminum is cited as the compound to be expected to allow an extreme effect to be manifested by the sublimation purification method. For example, a mechanical stirring method for directly destroying the shell formed on the surface of the compound by a vacuum-sealed poker with stirring blades attached at the tip thereof and continuing the stirring after the pulverization to reduce the surface shell is cited as the stirring method. An ultrasonic vibration method for irradiating an ultrasonic to the vessel storing the organic compound from the exterior of the vessel is cited as the vibration method.

COPYRIGHT: (C)1999,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 特許出願公開番号

特開平11-171801

(43) 公開日 平成11年(1999) 6月29日

(51) Int. Cl. ⁶

識別記号

F I

C07B 63/00

C07B 63/00

H

B01D 7/00

B01D 7/00

C07C209/84

C07C209/84

211/54

211/54

C07F 5/06

C07F 5/06

E

審査請求 未請求 請求項の数 4 O L (全 6 頁)

(21) 出願番号

特願平9-341532

(22) 出願日

平成 9 年(1997)12月11日

(71) 出願人 000183646

出光興産株式会社

東京都千代田区丸の内 3 丁目 1 番 1 号

(72) 発明者 東 久洋

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 東海林 弘

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(72) 発明者 細川 地潮

千葉県袖ヶ浦市上泉1280番地

(74) 代理人 弁理士 東平 正道

(54) 【発明の名称】 昇華精製方法

(57) 【要約】

【課題】 有機 E L 素子の構成材料などとして用いられる有機化合物を昇華精製するに際し、短時間にかつ効率的に実施できる方法の提供。

【解決手段】 昇華精製中に有機化合物の表面に形成される固い殻を攪拌、振動、または攪拌と振動の併用のいずれかの方法により破壊するか、または昇華精製中に融解した有機化合物を攪拌する。

【特許請求の範囲】

【請求項 1】 有機化合物を昇華精製するにあたり、有機化合物を攪拌または振動させることを特徴とする有機化合物の昇華精製方法。

【請求項 2】 有機化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子の形成に用いられる有機化合物である請求項 1 に記載の有機化合物の昇華精製方法。

【請求項 3】 有機化合物がキレート錯体化合物である請求項 1 または 2 に記載の有機化合物の昇華精製方法。

【請求項 4】 昇華中の有機化合物が固体状態または液体状態のいずれかである請求項 1 ～ 4 のいずれかに記載の有機化合物の昇華精製方法。

【発明の詳細な説明】

【 0 0 0 1 】

【発明の属する技術分野】 本発明は、有機化合物の昇華・精製方法に関し、有機エレクトロルミネッセンス素子（エレクトロルミネッセンスを以下「EL」と略記する）構成材料などとして用いられる有機化合物の純度向上に有効な昇華精製方法に関する。

【 0 0 0 2 】

【従来の技術】 電界発光を利用した EL 素子は、自己発光のため視認性が高く、かつ完全固体素子であるため、耐衝撃性に優れるなどの特徴を有することから、各種表示装置における発光素子としての利用が注目されている。この EL 素子には、発光材料として無機化合物を用いる無機 EL 素子と、有機化合物を用いる有機 EL 素子とがあり、このうち、有機 EL 素子は、印加電圧を大幅に低くし得るので小型化が容易であり、そのため次世代の表示素子としてその実用化研究が積極的になされている。一方、固体発光型の大面积かつフルカラー表示の素子としての用途も有望視され、盛んに実用化研究がなされている。

【 0 0 0 3 】 この様な状況下、有機 EL 素子の実用化研究における最大の課題は、長時間の駆動に伴う有機 EL 素子の発光輝度の減衰を抑制し、実用的にも耐え得るものとする技術を確認することである。この点、「月刊ディスプレイ、9月号、15頁（1995）」や、「応用物理、第66巻、第2号、114～115頁（1997）」によれば、有機 EL 素子を作成するために用いる各種有機化合物の純度が、発光効率や発光輝度の減衰に強く影響を及ぼすことが知られている。

【 0 0 0 4 】 通常、有機化合物には未反応物・中間生成物・無機塩類などの不純物が多く含まれているので、有機 EL 素子構成材料としてそのまま使用した場合には、前記不純物が正孔もしくは電子伝導を妨げるトラップあるいは正孔と電子の再結合を妨げるトラップとして作用するので、良好な発光輝度や長寿命を発現させることは困難であった。

【 0 0 0 5 】 そこで、有機 EL 素子構成材料として用いられる有機化合物の純度を向上する方法として、例えば

カラム精製、再結晶、再沈精製、昇華精製などの手法が従来より採用されてきており、これにより前記不純物を除去してきた。前記精製法の中でも、昇華精製方法は、純度向上のほかには有機 EL 素子作成時の真空蒸着時における系内減圧低下（真空度低下）に繋がる溶媒の除去にも効果的であり、有機 EL 素子構成材料の精製方法として広く用いられてきた。

【 0 0 0 6 】 しかしながら、通常の昇華精製方法をそのまま用いたのでは昇華に時間がかかり、また収率も低く、その改善が望まれていた。

【 0 0 0 7 】

【発明が解決しようとする課題】 本発明の目的は、上記従来技術の課題を解決し、有機 EL 素子構成材料などとして用いられる有機化合物を効率的（高収率、短時間）に昇華精製する方法を提供することにある。

【 0 0 0 8 】

【課題を解決するための手段】 本発明者らは、上記課題を解決するために鋭意研究を重ねた。有機 EL 素子構成材料の中には、π共役を有する炭素の主鎖に対して酸素および窒素が直接的に、または間接的に接続されている構造を有する分子、いわゆるキレート錯体化合物などがあるが、これら一連の錯体系化合物の昇華精製を検討した結果、次の様な問題が見い出された。

【 0 0 0 9 】 即ち、昇華に伴い有機 EL 素子構成材料の表面において固い殻が形成され、これにより熱伝導の低下をもたらす昇華効率が著しく低下したり、あるいは有機 EL 素子構成材料の内部に閉じ込められた分子の昇華がこれにより阻害されるため昇華継続を困難にすることである。また、殻が形成されることなく融解する有機 EL 素子構成材料においても、分子対流のみによる熱の拡散では、融解した有機 EL 素子構成材料を短時間に昇華することはできない。

【 0 0 1 0 】 これらの解決法を検討した結果、昇華中に有機化合物の表面に形成される殻を攪拌、振動、または攪拌と振動の併用のいずれかの方法により破壊あるいは粉碎するか、もしくは昇華中に溶解した有機化合物の熱伝導性を攪拌などの方法により向上させることにより、昇華効率の向上、即ち、高収率、昇華時間の短縮化を図ることができることを見出した。

【 0 0 1 1 】 本発明は、かかる知見に基づいて完成したものである。即ち、本発明の要旨は以下の通りである。

(1) 有機化合物を昇華精製するにあたり、有機化合物を攪拌または振動させることを特徴とする有機化合物の昇華精製方法。

(2) 有機化合物が有機エレクトロルミネッセンス素子の形成に用いられる有機化合物である前記 (1) に記載の有機化合物の昇華精製方法。

【 0 0 1 2 】 (3) 有機化合物がキレート錯体化合物である前記 (1) または (2) に記載の有機化合物の昇華精製方法。

(4) 昇華中の有機化合物が固体状態または液体状態のいずれかである前記(1)～(4)のいずれかに記載の有機化合物の昇華精製方法。

[0013]

【発明の実施の形態】以下、本発明を詳細に説明する。本発明の有機化合物の昇華精製方法は、昇華中の前記有機化合物の攪拌、振動、攪拌と振動の併用のいずれかの方法により昇華を促進することを特徴とする。本発明の昇華精製方法を用いた場合、顕著な効果を期待できる有機化合物としては、 π 共役を有する炭素の主鎖に対して酸素および窒素が直接的に、または間接的に接続されている構造を有する分子、いわゆるキレート錯体化合物が挙げられる。

【0014】ここで、いわゆるキレート錯体化合物が、本発明の昇華精製方法を用いた場合、顕著な効果を期待できる理由は、次の様に考えられる。即ち、一般的に、キレート錯体化合物は、結晶水を含有していたり配位子が金属の配位数を満足するだけの配位基を持たない場合、配位されずに残された位置は、他の一座配位子とか溶媒分子である H_2O などの配位によって満たされている。

【0015】これらのキレート錯体化合物が加熱され、結晶水を失い無水キレート錯体化合物となったり、配位水を失ったりすると、キレート錯体化合物の凝集が起こり殻が形成された様な状態となる。この様な、キレート錯体化合物の凝集により形成された殻を、攪拌、振動、または攪拌と振動の併用のいずれかの方法により破壊あるいは粉碎することにより、固相から気相への転移を促進することができるからである。

【0016】キレート錯体化合物の具体例としては、トリス(8-キノリノラト)アルミニウム、トリス(5-クロロ-8-キノリノラト)アルミニウム、トリス(5-ブロモ-8-キノリノラト)アルミニウム、トリス(5,7-ジクロロ-8-キノリノラト)アルミニウム、トリス(2-メチル-5-クロロ-8-キノリノラト)アルミニウム、トリス(5-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウムオキサイドなどのアルミキノリン誘導体、あるいは、Bi、Cd、Co、Cr、Cu、Fe、Ga、In、Mg、Mn、 MoO_3 、Ni、Pb、Sb、Th、 TiO_2 、Be、 V_2O_5 、 WO_3 、Zn、Zrを中心金属とするキノリン誘導体、などが挙げられる。

【0017】この他の具体例としては、2-(α -ヒドロキシフェニル)ベンゾチアゾール金属錯体、10-ヒドロキシベンゾキノリン錯体、アゾメチン錯体、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(アリアルラート)錯体、などが挙げられる。ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(アリアルラート)錯体の具体例としては、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(フェ

ノラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(オルソ-クレゾラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(メタ-クレゾラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(パラ-クレゾラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-8-キノリノラト)(オルソ-フェニールフェノラート)アルミニウム(III)、ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)- μ -oxo-ビス(4-エチル-2-メチル-8-キノリノラト)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-4-メトキシキノラート)アルミニウム(III)- μ -oxo-ビス(2-メチル-4-メトキシキノリノラート)アルミニウム(III)、ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)- μ -oxo-ビス(5-シアノ-2-メチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)、ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)- μ -oxo-ビス(2-メチル-5-トリフルオロメチル-8-キノリノラート)アルミニウム(III)、などが挙げられる。

【0018】また、この他の具体例としては、キナクドリン系化合物、フタロシアン系化合物、あるいは芳香族縮合環を有する化合物が挙げられる。キナクドリン系化合物の具体例としては、2,3-キナクドリン、などが挙げられる。フタロシアン系化合物の具体例としては、フタロシアン銅(α 型)、フタロシアン銅(β 型)、などが挙げられる。芳香族縮合環を有する化合物の具体例としては、ジベンゾ[f,g,i,j]ペンタフェン、ベンゾ[a]ピレン、ベンゾ[b]ペリレン、ジベンゾ[a,e]ピレン、ジベンゾ[b,h]ピレン、ジベンゾ[e,l]ピレン、ジベンゾ[a,h]ピレン、ジベンゾ[d,e,q,r]ナフタセン、ジベンゾ[c,M,n]クリセン、ジベンゾ[o,p,q,s,t,u]ピセン、ペリレン、などが挙げられる。

【0019】さらに、上記以外の有機化合物としては、9,10-ジフェニルアントラセン、1,1,4,4-テトラフェニル-1,3-ブタジエン、3,4,9,10-ペリレンテトラカルボキシリックジイミド、などが挙げられる。いずれにせよ、昇華精製中に、有機化合物中に含まれる結晶水などを失い、表面に殻が形成される様な有機化合物においてその効果を発揮する。

【0020】その他、加熱により融解する有機化合物ではあるが、攪拌を行わなければ融解するにも時間がかかり、また溶解後も対流のみで熱の伝導が効率的でなく均一な温度分布とならないような場合であっても、本発明の方法によれば、攪拌を行うことにより熱伝導を効率的に行うことができ、本方法の目的とする効率のよい昇華精製が可能となる。

【0021】この昇華精製方法に好適に適用できる有機

化合物としてキレート錯体化合物などを挙げたが、昇華精製を目的する限りこれらに限定されるものではない。次に、表面に形成された殻を破壊あるいは粉碎し、昇華を促進する方法として、大きく分類すると次の2通りが挙げられる。即ち、それは、攪拌方法および振動方法である。

【0022】以下、その具体的な方法について説明する。まず、第一の方法である攪拌方法について説明する。この第一の具体例として、メカニカル攪拌方法がある。この方法の一例を図1に示す。このメカニカル攪拌方法は、真空シールされた攪拌棒の先端に、例えば攪拌羽根を装着し、人力あるいは機械力により表面に形成された殻を直接破壊し、粉碎し、その後攪拌を継続し表面の殻を減少させる方法である。

【0023】また、第二の具体例として、マグネティック攪拌方法がある。この方法の一例を図2に示す。このマグネティック攪拌方法は、昇華精製を目的とする有機化合物と共に、いわゆるマグネティックバーを存在させ、このマグネティックバーを外部回転機構を用いて任意の回転数で回転させることにより、表面の殻を直接破壊し、粉碎し、その後攪拌を継続し表面の殻を減少させる方法である。この方法によれば、緩やかな回転を継続することができ、熱伝導の分散効果が大きいので昇華効率を向上させることができる。

【0024】前記以外の攪拌方法としては、例えば鉄球を表面の殻の上に落下させる方法により、破壊し、粉碎する方法が挙げられる。次に、第二の方法である振動方法について説明する。この第一の具体例として、超音波振動方法が挙げられる。この方法は、昇華精製を目的とする有機化合物の存在する容器の外部に超音波発生装置を付設し、外部より超音波を照射し、これにより表面の殻を破壊し、粉碎する方法である。この超音波の周波数は、数百ヘルツから数千メガヘルツの範囲において適宜選択される。

【0025】また、第二の具体例として、直接振動方法が挙げられる。この方法は、昇華精製を目的とする有機化合物の存在する容器を外部より、直接機械的振動あるいは人力による振動を与え、表面の殻を破壊し、粉碎し、攪拌する方法である。前記の方法は適宜選択でき、前記第一の方法を単独で用いるか、前記第二の方法を単独で用いるか、あるいは前記第一の方法と前記第二の方法を併用してもよい。

【0026】適宜選択された前記第一の方法、前記第二の方法は、あるいは前記第一の方法と前記第二の方法の併用は、昇華精製のために昇温を開始した時から実施してもよく、あるいは有機化合物の表面に殻が形成された後、または有機化合物が融解した後に実施してもよく、特に制限されるものではない。また、前記第一の方法、前記第二の方法、あるいは前記第一の方法と前記第二の方法の併用を実施する時間は、昇華精製のために昇温を

開始した時から連続して行ってもよいし、あるいは昇華精製中の有機化合物の様子を、覗き窓などを通して外部から観察し、その結果を基に間欠的に実施してもよい。

【0027】本発明の方法は有機EL素子の構成材料として用いられる有機化合物の昇華精製に有効に利用できる。ここで、有機EL素子とは、陽極と陰極との間に介在する有機化合物層中に少なくとも発光層を含むものである。この有機化合物層は、発光層のみからなる層であってもよく、また、発光層とともに、正孔注入輸送層などを積層した多層構造のものであってもよい。

【0028】この有機EL素子において、発光層は

(1) 電界印加時に、陽極または正孔輸送層により正孔を注入することができ、かつ電子注入層より電子を注入することができる機能、(2) 注入した電荷(電子と正孔)を電界の力で移動させる輸送機能、(3) 電子と正孔の再結合の場を発光層内部に提供し、これを発光につなげる発光機能などを有している。電子注入層は、特に陰極から有機化合物層に良好に電子注入ができる機能を有する。

【0029】この発光層に用いられる発光材料の種類については特に制限はなく、従来から知られている有機EL素子において公知のものを用いることができる。例えば、具体例として、キレート錯体系化合物、ブタジエン、などが挙げられる。また、正孔注入輸送層は、正孔伝達化合物からなる層であって、陽極より注入された正孔を発光層に伝達する機能を有し、この正孔注入輸送層を陽極と発光層との間に介在させることにより、より低い電界で多くの正孔が発光層に注入される。その上、電子注入層より発光層に注入された電子は、発光層と正孔注入輸送層の界面に存在する電子の障壁により、この発光層内の界面近くに蓄積されたEL素子の発光効率を向上させ、その結果発光性能の優れたEL素子となる。この正孔注入輸送層に用いられる正孔伝達化合物については特に制限はなく、従来から有機EL素子において使用されてきた、正孔伝達化合物として公知のものを使用することができる。例えば、具体的には、フタロシアニン系化合物、などが挙げられる。また、正孔注入輸送層は、単層のみでなく多層とすることもできる。

【0030】この電子注入輸送層に用いられる電子伝達化合物については特に制限はなく、従来から有機EL素子において使用されてきた、電子伝達化合物として公知のものを使用することができる。例えば、具体的には、キレート錯体系化合物、ペリレンテトラカルボキシリクジイミド、などが挙げられる。これら以外にも、各層に微量の添加物などを混入することも可能であるが、それらも有機化合物で形成されている。

【0031】ここで用いる微量の添加物はドーパントと呼ばれるが、各層の電荷注入性を向上させたり、あるいはそれ自身が発光種となったりして、有機EL素子の性能を向上させる目的のために用いるものである。このド

ーパントとして各層に用いられる化合物については特に制限はなく、従来から有機Eし素子において使用されてきた、ドーパントとして公知のものを使用することができる。例えば、具体的には、キナクリドン系化合物、芳香族縮合環化合物、などが挙げられる。

【0032】本発明の方法は、これら有機Eし素子を構成するいずれかの層で用いられる各種有機化合物の昇華精製に有効に利用できるものである。

【0033】

【実施例】次に、本発明を実施例により説明するが、本10 発明はこれら実施例に何ら限定されるものではない。

【実施例1】 昇華精製中の状態が固体の場合
再結晶精製を行ったトリス（8-キノリノラト）アルミニウム（以下、Alqと略記）30gを、昇華精製装置に仕込んだ。

【0034】昇華チップを冷却するため冷却水を流し、回転ポンプで粗引きし、拡散ポンプにて 5.0×10^{-5} torrまで減圧し、その後昇温し、減圧度は約 10^{-5} torrを保った状態で昇華を開始した。Alqを300℃まで加熱した時に表面層に殻が形成されたので、図1に示した様な羽根付きの攪拌モーターを作動させ殻を破壊し、粉碎し、固体状態のまま攪拌を続けた。20

【0035】その後、310℃に保持し、昇華精製を行い3時間を経過した時点で昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ27gであり、収率は90%と高収率であった。

【比較例1】 昇華精製中の状態が固体の場合
Alqを一切攪拌しなかった以外は、実施例1と同様に昇華精製を行った。

【0036】約300℃に昇温したところ、表面に固い殻が形成され、さらに昇温したところ昇華精製装置のAlqが底から浮き始め、その後は全く昇華することはなかった。最終的には400℃まで昇温したが、昇華精製装置と接する殻の縁が昇華するのみで、昇華効率は極めて悪かった。昇華精製を開始し5時間を経過した後、昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ10gであり、収率は33%と低かった。

【0037】この実施例1、比較例1から判る様に、表面の殻を破壊することにより、高収率（収率90%）で、かつ短時間に昇華精製することができた。40

【実施例2】 昇華精製中の状態が液体の場合
再結晶精製を行ったN,N'-ジフェニル-N,N'-ビス（3-メチルフェニル）-（1,1'-ビフェニル）-4,4'-ジアミン（以下、TPDと略記する）（融点168℃）30gを、マグネティックバーと共に図2に示した様な昇華精製装置に仕込んだ。

【0038】昇華チップを冷却するため冷却水を流し、回転ポンプで粗引きし、拡散ポンプにて 5.0×10^{-5} 50

torrまで減圧し、その後昇温し、減圧度は約 10^{-5} torrを保った状態で昇華を開始した。昇華精製装置の加熱ヒーターの温度が190～195℃に到達した時に、昇華精製装置内のTPDが溶解し溶液状態になった。

【0039】その後、昇華精製装置内のマグネティックバーを外部の回転装置により回転させ攪拌しながら昇温をしたところ、昇華精製装置の加熱ヒーターの温度が210～220℃に到達した時点で昇華を観察できた。そして、220℃に保持し、攪拌しながら昇華精製を行い、4時間を経過した時点で昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ25gであり、収率は83%と高収率であった。

【0040】【比較例2】 昇華精製中の状態が液体の場合

TPDとマグネティックバーを外部の回転装置を用いて一切回転しなかった以外は、実施例2と同様に昇華精製を行った。昇華精製を開始し6時間を経過した後、昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ20gであり、収率は67%と低かった。

【0041】この実施例2、比較例2から判る様に、昇華精製中に溶解し液体状態となる有機化合物も、攪拌することにより、高効率（収率83%）で、かつ短時間に昇華精製することができた。

【実施例3】 昇華精製中の状態が固体の場合
再結晶精製を行ったAlq30gを、昇華精製装置に仕込んだ。

【0042】昇華チップを冷却させるため冷却水を流し、回転ポンプで粗引きし、拡散ポンプにて 5.0×10^{-5} torrまで減圧した。その後、図1に示した様な羽根付きの攪拌モーターを100回転/分以下の低速回転で攪拌しながら昇温し、減圧度は約 10^{-5} torrを保った状態で昇華を開始した。Alqを300℃まで加熱した時点においても攪拌を維持しているため、表面層に殻は形成されなかった。そして、固体状態のまま攪拌モーターを100回転/分以下の低速回転で攪拌を続けた。

【0043】その後、310℃に保持しながら昇華精製を行い、3時間を経過した時点で昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ28gであり、収率は93%と高収率であった。

【実施例4】 昇華精製中の状態が液体の場合
再結晶精製を行ったTPD（融点168℃）30gを、マグネティックバーと共に昇華精製装置に仕込んだ。

【0044】昇華チップを冷却するため冷却水を流し、回転ポンプで粗引きし、拡散ポンプにて 5.0×10^{-5} torrまで減圧し、その後マグネティックバーを動か

し、固体状態のまま攪拌した。その後昇温し、減圧度は約 10^{-5} torr を保った状態で昇華を開始した。昇華精製装置の加熱ヒーターの温度が $190 \sim 192^{\circ}\text{C}$ に到達した時に、昇華精製装置内の TPD が溶解し溶液状態になった。

【0045】その後、そのまま昇華精製装置内のマグネティックバーを外部の回転装置により回転させ攪拌しながら昇温をしたところ、昇華精製装置の加熱ヒーターの温度が $210 \sim 220^{\circ}\text{C}$ に到達した時点で昇華が観察できた。そして、 220°C に保持し、攪拌しながら昇華精製を行い、4 時間を経過した時点で昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ 26 g であり、収率は 86% と高収率であった。

【0046】〔実施例 5〕 昇華精製中の状態が固体の場合

再結晶精製を行った Alq 30 g を、昇華精製装置に仕込んだ。Alq を一切攪拌しなかった以外は、実施例 1 と同様に昇華精製を行った。約 300°C に昇温したところ、表面に固い殻が形成され、さらに昇温したところ昇華精製装置の Alq が底から浮き始め、その後は全く昇華することはなかった。

【0047】その後、攪拌モーターを作動させ殻を破壊し、粉碎し、固体状態のまま攪拌を続けたところ、昇華が観察され、その後 310°C に保持し、昇華精製を行い 3 時間を経過した時点で昇華精製を終了した。昇華チップに付着した昇華精製物を採取し、その重量を測定したところ 26.5 g であり、収率は 88% と高収率であった。

【0048】この実施例から判る様に、Alq に殻が形成され、底が浮いた状態であっても、殻を破壊し、粉碎し、攪拌することにより、昇華精製を効率的に行うことができた。

【0049】

【発明の効果】本発明の昇華精製方法は、昇華中の有機化合物を攪拌、振動、または攪拌と振動の併用のいずれかの方法を用いるので、昇華中に固い殻の形成される有機化合物、あるいは昇華中に液体の状態になる有機化合物であっても昇華効率の向上、昇華時間の短縮化を図ることができる。

【0050】また、この様に精製され純度の向上した有機化合物は、有機 EL 素子の構成材料の他に、色素材料、電子写真感光体材料などとして好適に用いられる。

【図面の簡単な説明】

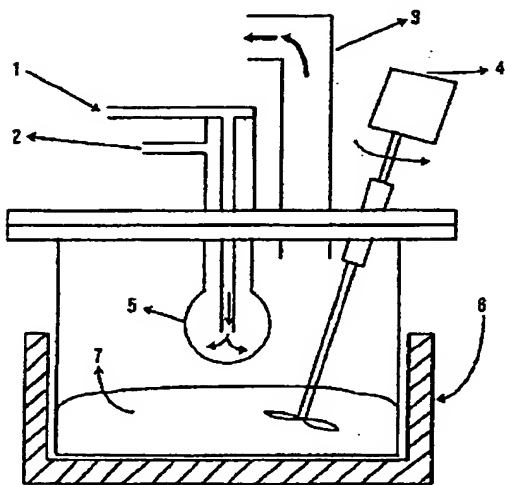
【図 1】 本発明の具体例としてのメカニカル攪拌方法を示した模式図である。

【図 2】 本発明の具体例としてのマグネティック攪拌方法を示した模式図である。

【符号の説明】

- 1 冷却水（入口）
- 2 冷却水（出口）
- 3 拡散ポンプ排気ライン
- 4 攪拌モーター
- 5 昇華チップ
- 6 加熱ヒーター
- 7 有機化合物
- 8 マグネティックバー
- 9 マグネティックスターラー

【図 1】



【図 2】

